

**PCT**  
  
**NOTIFICATION OF ELECTION**  
  
(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner  
US Department of Commerce  
United States Patent and Trademark  
Office, PCT  
2011 South Clark Place Room  
CP2/5C24  
Arlington, VA 22202  
ETATS-UNIS D'AMERIQUE  
  
in its capacity as elected Office

Date of mailing: <p style="text-align: center;">08 March 2001 (08.03.01)</p>	
International application No.: <p style="text-align: center;">PCT/JP00/05694</p>	Applicant's or agent's file reference: <p style="text-align: center;">F-407PCT</p>
International filing date: <p style="text-align: center;">24 August 2000 (24.08.00)</p>	Priority date: <p style="text-align: center;">27 August 1999 (27.08.99)</p>
Applicant: <p style="text-align: center;">KURODA, Takeo et al</p>	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International preliminary Examining Authority on:  

19 January 2001 (19.01.01)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:  

\_\_\_\_\_

2. The election ☒ was

☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

<p style="text-align: center;">The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland</p> <p>Facsimile No.: (41-22) 740.14.35</p>	Authorized officer:  <p style="text-align: center;">J. Zahra</p> <p>Telephone No.: (41-22) 338.83.38</p>
--	--



127

Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference F-407PCT	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP00/05694	International filing date (day/month/year) 24 August 2000 (24.08.00)	Priority date (day/month/year) 27 August 1999 (27.08.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C09J 201/00, 4/06, 171/02, 5/00		
Applicant SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.		

<p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>5</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of <u>4</u> sheets.</p>	
<p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input checked="" type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>	

Date of submission of the demand 19 January 2001 (19.01.01)	Date of completion of this report 22 May 2001 (22.05.2001)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.



## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/05694

## I. Basis of the report

## 1. With regard to the elements of the international application:\*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:  
pages \_\_\_\_\_ 1-37 \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☒ the claims:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_ 1,3,5-8,10-11 \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_ 12 April 2001 (12.04.2001)
- ☐ the drawings:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

## 2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

## 3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☒ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☒ the claims, Nos. \_\_\_\_\_ 2,4,9 \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.



**V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement****1. Statement**

Novelty (N)	Claims		YES
	Claims	1, 3, 5-8, 10, 11	NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	1, 3, 5-8, 10, 11	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1, 3, 5-8, 10, 11	YES
	Claims		NO

**2. Citations and explanations**

- Document 1: JP, 6-80825, A (Three Bond Co., Ltd.), 22 March 1994 (22.03.94); claims and paragraph [0019] (Family: none)
- Document 2: JP, 6-228248, A (Three Bond Co., Ltd.), 16 August 1994 (16.08.94); claims and paragraphs [0019] and [0021] (Family: none)
- Document 3: JP, 9-137137, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 27 May 1997 (27.05.97); claims and paragraph [0020] (Family: none)
- Document 4: JP, 3-160053, A (Kanegafuchi Chem. Ind. Co., Ltd.), 10 July 1991 (10.07.91); claims and page 5, lower right column (Family: none)
- Document 5: JP, 8-325466, A (Asahi Glass Co., Ltd.), 10 December 1996 (10.12.96); claims and paragraph [0057] (Family: none)
- Document 6: EP, 35049, A1 (Kanegafuchi Chem. Ind. Co., Ltd.), 9 September 1981 (09.09.81), claim & JP, JP-55-36241, A & US, 4322272, A

**(1) Novelty**

The inventions described in Claims 1, 3, 5-8, 10 and 11 are not novel over Documents 1-6 cited in the international search report.

Documents 1-6 disclose adhesive compositions with





the same constituents, where the constituents include (A) a certain compound formed by substituting alkoxysilyl groups into a polymer, (B) a compound for crosslinking compound (A), (C) a compound the molecule of which includes a certain polymerizable group, (D) a compound which initiates polymerization of the polymerizable group in compound (C) on exposure to light, and (E) a certain thixotropic agent. They also further disclose methods for joining joined members by certain means using said adhesive compositions.

(2) Inventive step

The inventions described in Claims 1, 3, 5-8, 10 and 11 do not involve an inventive step in the light of Documents 1-6 cited in the international search report.

Documents 1-6 disclose adhesive compositions with the same constituents, where the constituents include (A) a certain compound formed by substituting alkoxysilyl groups into a polymer, (B) a compound for crosslinking compound (A), (C) a compound the molecule of which includes a certain polymerizable group, (D) a compound which initiates polymerization of the polymerizable group in compound (C) on exposure to light, and (E) a certain thixotropic agent, and appropriate adjustment of the viscosity of the adhesive, appropriate determination of post-curing properties such as elongation at break and determination of ideal ranges, and optimal composition are such as can be performed easily by a person skilled in the art.

Moreover, the ranges for these values stipulated in the above claims are wide ranges, and although they vary depending on the constitution of the composition no specific constitution is stipulated. Therefore, said stipulations do not form a special technical feature.



## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/05694

## VI. Certain documents cited

## 1. Certain published documents (Rule 70.10)

<u>Application No. Patent No.</u>	<u>Publication date (day/month/year)</u>	<u>Filing date (day/month/year)</u>	<u>Priority date (valid claim) (day/month/year)</u>
JP,2000-44923,A E,X	15 February 2000 (15.02.2000)	04 February 1999 (04.02.1999)	27 May 1998 (27.05.1998)
JP,2000-273418,A E,X	03 October 2000 (03.10.2000)	25 March 1999 (25.03.1999)	

## 2. Non-written disclosures (Rule 70.9)

<u>Kind of non-written disclosure</u>	<u>Date of non-written disclosure (day/month/year)</u>	<u>Date of written disclosure referring to non-written disclosure (day/month/year)</u>



REC'D 08 JUN 2001

WIPO PCT

PCT

## 国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)  
〔PCT36条及びPCT規則70〕

出願人又は代理人 の書類記号 F-407PCT	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知（様式PCT/ IPEA/416）を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/05694	国際出願日 (日.月.年) 24. 08. 00	優先日 (日.月.年) 27. 08. 99
国際特許分類 (IPC) Int.Cl <sup>7</sup> C09J201/00, C09J4/06, C09J17102, C09J5/00		
出願人 (氏名又は名称)  積水化学工業株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条（PCT36条）の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 4 ページからなる。
- ☒ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び／又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び／又は図面も添付されている。  
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)  
この附属書類は、全部で 4 ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。
- I ☒ 国際予備審査報告の基礎
- II ☐ 優先権
- III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
- IV ☐ 発明の単一性の欠如
- V ☒ PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- VI ☒ ある種の引用文献
- VII ☐ 国際出願の不備
- VIII ☐ 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 19. 01. 01	国際予備審査報告を作成した日 22. 05. 01	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員)  安藤 達也 印 電話番号 03-3581-1101 内線 3483	4V 9285



## I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT 14条)の規定に基づく命令に  
応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。  
PCT規則70.16, 70.17)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書 第 1-37 ページ、 出願時に提出されたもの  
明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☒ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 出願時に提出されたもの  
請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 PCT 19条の規定に基づき補正されたもの  
請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
請求の範囲 第 1,3,5-8,10-11 項、 12.04.01 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 出願時に提出されたもの  
図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☒ 請求の範囲 第 2, 4, 9 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならない、本報告に添付する。)





## V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

## 1. 見解

新規性(N)

請求の範囲

請求の範囲

1, 3, 5-8, 10, 11

有

無

進歩性(IS)

請求の範囲

請求の範囲

1, 3, 5-8, 10, 11

有

無

産業上の利用可能性(IA)

請求の範囲

請求の範囲

1, 3, 5-8, 10, 11

有

無

## 2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

文献1: JP, 6-80825, A (株式会社スリーボンド), 22. 3月. 1994 (22. 03. 94),

特許請求の範囲、【0019】 (ファミリーなし)

文献2: JP, 6-228248, A (株式会社スリーボンド), 16. 8月. 1994 (16. 08. 94),

特許請求の範囲、【0019】、【0021】 (ファミリーなし)

文献3: JP, 9-137137, A (積水化学工業株式会社), 27. 5月. 1997 (27. 05. 97),

特許請求の範囲、【0020】 (ファミリーなし)

文献4: JP, 3-160053, A (鐘淵化学工業株式会社), 10. 7月. 1991 (10. 07. 91),

特許請求の範囲、5頁右下欄 (ファミリーなし)

文献5: JP, 8-325466, A (旭硝子株式会社), 10. 12月. 1996 (10. 12. 96),

特許請求の範囲、【0057】 (ファミリーなし)

文献6: EP, 35049, A1 (KANEGAFUCHI KAGAKU KOGYO KABUSHIKI KAISYA),

09. Sep. 1981 (09. 09. 81), CLAIM

&amp; JP, 55-36241, A &amp; US. 4322272, A

## (1) 新規性について

請求の範囲1, 3, 5-8, 10及び11に記載された発明は、国際調査報告書で引用された文献1-6により新規性を有さない。

すなわち、文献1-6には、(A) 所定のポリマー中にアルコキシシリル基が置換した化合物、(B) 化合物(A)を架橋させるための化合物、(C) 分子中に所定の重合性基を有する化合物、(D) 化合物(C)中の重合性基を光により重合開始させる化合物及び(E) 所定のチキソトロピー付与剤等を成分として含有する、構成成分が同一の接着剤組成物が記載されている。さらに、当該接着剤組成物を用いて、所定的手段により接合部材を接合する方法も記載されている。

## (2) 進歩性について

請求の範囲1, 3, 5-8, 10及び11に記載された発明は、国際調査報告書で引用された文献1-6により進歩性を有さない。

すなわち、文献1-6には、(A) 所定のポリマー中にアルコキシシリル基が置換した化合物、(B) 化合物(A)を架橋させるための化合物、(C) 分子中に所定の重合性基を有する化合物、(D) 化合物(C)中の重合性基を光により重合開始させる化合物及び(E) 所定のチキソトロピー付与剤等を成分として含有する、構成成分が同一の接着剤組成物が記載されており、接着剤の粘度を適宜調整すること、硬化物の破断点伸び等の物性を適宜測定し好適な範囲に定めること及び構成成分を適宜好適化することは、当業者が容易になし得る事項に過ぎない。

しかも、上記請求の範囲で規定されているこれらの数値は広範なものであり、かつ、構成成分の種類により変化するものであるところ具体的な構成成分が規定されているものでもない。したがって、当該規定により格別な技術的特徴が形成されるところは認められない。



VI. ある種の引用文献

1. ある種の公表された文書 (PCT規則70.10)

出願番号 特許番号	公知日 (日. 月. 年)	出願日 (日. 月. 年)	優先日 (有効な優先権の主張) (日. 月. 年)
JP. 2000-44923. A E, X	15. 02. 00	04. 02. 99	27. 05. 98
JP. 2000-273418. A E, X	03. 10. 00	25. 03. 99	

2. 書面による開示以外の開示 (PCT規則70.9)

書面による開示以外の開示の種類	書面による開示以外の開示の日付 (日. 月. 年)	書面による開示以外の開示に言及している 書面の日付 (日. 月. 年)
-----------------	------------------------------	--



請 求 の 範 囲

1. (補正後) (A) 一分子中に2個以上の加水分解性シリル基を有する化合物
- 5 (B) 化合物(A)を架橋させるための化合物  
(C) 分子中に重合性基を有する化合物  
(D) 化合物(C)中の重合性基を光により重合開始させる化合物  
(E) ガラスバルーン、ガラスビーズ、表面処理炭酸カルシウム及び各種シリカからなる群より選ばれる少くとも1種であるチキソトロピー付
- 10 与剤等を含む接着剤組成物であって、  
25℃における粘度が1～1000万c p sであり、前記接着剤組成物に前記活性エネルギー線の照射を終了直後の化合物(A)，(C)の転化率が10～70%の範囲にあり、前記接着剤組成物への活性エネルギー線の照射を終了した直後の動的剪断弾性率が $10^5 \sim 10^7$  P aの範囲にあり、
- 15 前記接着剤組成物への活性エネルギー線の照射を終了してから25℃で24時間養生した後の化合物(A)，(C)の転化率が50～100%の範囲にあり、前記接着剤組成物への前記活性エネルギー線の照射を終了してから25℃で24時間養生した後の硬化物の破断点伸びが10～
- 20 1000%、かつ動的引っ張り弾性率が $10^5 \sim 10^9$  P aの範囲にあることを特徴とする接着剤組成物。
2. (削除)
3. (補正後) 前記接着剤組成物に活性エネルギー線の照射を終了直後の化合物(A)，(C)の転化率が30%以下であり、25℃における
- 25 粘度が1～1000万c p sの範囲にあり、  
前記接着剤組成物への前記活性エネルギー線の照射を終了してから2



5℃で12時間養生した後の化合物(A)，(C)の転化率が50～100%の範囲にあることを特徴とする請求項1に記載の接着剤組成物。

4. (削除)

5





5. (補正後) 上記化合物 (A) の加水分解性シリル基がアルコキシシリル基であって、また、化合物 (A) がポリアルキレングリコールまたはポリオレフィンから選ばれるポリマー中に該アルコキシシリル基が置換した化合物であることを特徴とする請求項 1 または 3 に記載の接着剤組成物。
6. (補正後) 上記化合物 (C) の重合性基がラジカル重合性基であって、上記化合物 (D) が光ラジカル発生剤であることを特徴とする請求項 1、3 または 5 に記載の接着剤組成物。
7. (補正後) 上記化合物 (C) のラジカル重合性基が、アクリロイル基またはメタクリロイル基から選ばれる重合性基であることを特徴とする請求項 1、3、5 または 6 のいずれかに記載の接着剤組成物。
8. (補正後) 上記化合物 (C) が、分子内に重合性基を 1 個以上有する重量平均分子量 3000 以上の重合性化合物 (F) を少なくとも 1 種含むことを特徴とする、請求項 1、3、5、6 または 7 のいずれかに記載の接着剤組成物。
9. (削除)
10. (補正後) 請求項 1、3、5～8 のいずれかに記載の接着剤組成物を、接合部材の片方に塗布し、塗布した接着剤組成物層の上面から光を照射し、その後、他方の接合部材を貼り合わせることを特徴とする接合部材の接合方法。
11. (追加) (X) 架橋性基あるいは重合性基を有する化合物と、  
(Y) 活性エネルギー線を照射されることにより、化合物 (X) の少なくとも一部を架橋もしくは重合させる成分を生成する化合物 (Y) とを含有する接着剤組成物であって、
- 前記接着剤組成物に活性エネルギー線の照射を終了直後の化合物 (X) の転化率が 30% 以下であり、25℃における粘度が 1～1000 万 c



p s の範囲にあり、

前記接着剤組成物への前記活性エネルギー線の照射を終了してから 2  
5℃で 1 2 時間養生した後の化合物 (X) の転化率が 5 0 ~ 1 0 0 % の  
範囲にあることを特徴とする接着剤組成物。

5



## PATENT COOPERATION TREATY



From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION CONCERNING  
SUBMISSION OR TRANSMITTAL  
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

To:

MIYAZAKI, Chikara  
Nishimura Bldg.  
6-5, Tanimachi 1-chome  
Chuo-ku  
Osaka-shi  
Osaka 540-0012  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 06 November 2000 (06.11.00)	
Applicant's or agent's file reference F-407PCT	<b>IMPORTANT NOTIFICATION</b>
International application No. PCT/JP00/05694	International filing date (day/month/year) 24 August 2000 (24.08.00)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 27 August 1999 (27.08.99)
Applicant SEKISUI CHEMICAL CO., LTD. et al	

1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
3. An asterisk(\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
27 Augu 1999 (27.08.99)	11/241599	JP	27 Sept 2000 (27.09.00)

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Magda BOUACHA

Telephone No. (41-22) 338.83.38



## 国際調査報告

(法 8 条、法施行規則第40、41条)  
〔P C T 1 8 条、P C T 規則43、44〕

出願人又は代理人 の書類記号 F-407PCT	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(P C T / I S A / 2 2 0 ) 及び下記 5 を参照すること。	
国際出願番号 P C T / J P 0 0 / 0 5 6 9 4	国際出願日 (日.月.年) 24. 08. 00	優先日 (日.月.年) 27. 08. 99
出願人 (氏名又は名称) <b>積水化学工業株式会社</b>		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条 (P C T 1 8 条) の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

## 1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない (第 I 欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している (第 II 欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第 III 欄に示されているように、法施行規則第47条 (P C T 規則38.2(b)) の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から 1 カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 \_\_\_\_\_ 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。

☒ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。





## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int Cl<sup>7</sup> C09J201/00, C09J4/06, C09J171/02, C09J5/00

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int Cl<sup>7</sup> C09J1/00-C09J201/10, C08L1/00-C08L101/16,

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922年-1996年

日本国公開実用新案公報 1971年-2000年

日本国登録実用新案公報 1994年-2000年

日本国実用新案登録公報 1996年-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CA (STN), WPI/L (QUESTEL), REGISTRY (STN)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 6-80825, A (株式会社スリーボンド), 22. 3月. 1994 (22. 03. 94), 特許請求の範囲、【0019】 (ファミリーなし)	1-10
X	JP, 6-228248, A (株式会社スリーボンド) 16. 8月. 1994 (16. 08. 94), 特許請求の範囲、【0019】、【0021】 (ファミリーなし)	1-10
X	JP, 9-137137, A (積水化学工業株式会社), 27. 5月. 1997 (27. 05. 97), 特許請求の範囲、【0020】 (ファミリーなし)	1-10

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

13. 11. 00

国際調査報告の発送日

21.11.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

安藤 達也 印

4V 9285

電話番号 03-3581-1101 内線 3483



C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 3-160053, A (鍾淵化学工業株式会社), 10. 7月. 1991 (10. 07. 91), 特許請求の範囲、5頁右下欄 (ファミリーなし)	1-10
X	JP, 8-325466, A (旭硝子株式会社), 10. 12月. 1996 (10. 12. 96), 特許請求の範囲、【0057】 (ファミリーなし)	1-10
X	EP, 35049, A1 (KANEGAFUCHI KAGAKU KOGYO KABUSHIKI KAISYA), 09. Sep. 1981 (09. 09. 81), CLAIM & JP, 55-36241, A & US. 4322272, A	1-10
P, X	JP, 2000-44923, A (積水化学工業株式会社), 15. 2月. 2000 (15. 02. 00), 特許請求の範囲、【0098】 (ファミリーなし)	1-10
E, X	JP, 2000-273418, A (積水化学工業株式会社), 3. 10月. 2000 (03. 10. 00), 特許請求の範囲、【0016】 (ファミリーなし)	1-10



(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2001年3月8日 (08.03.2001)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 01/16248 A1

- (51) 国際特許分類: C09J 201/00, 4/06, 171/02, 5/00 (74) 代理人: 宮崎主税, 外(MIYAZAKI, Chikara et al.); 〒540-0012 大阪府大阪市中央区谷町1丁目6番5号 西村ビル Osaka (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/05694
- (22) 国際出願日: 2000年8月24日 (24.08.2000) (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願平11/241599 1999年8月27日 (27.08.1999) JP (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 積水化学工業株式会社 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒530-8565 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 黒田健夫 (KURODA, Takeo) [JP/JP], 福井弘司 (FUKUI, Hiroji) [JP/JP], 石澤英亮 (ISHIZAWA, Hideaki) [JP/JP]; 〒618-8589 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP).
- 添付公開書類:  
— 国際調査報告書
- 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: ADHESIVE COMPOSITION AND METHOD OF BONDING WITH THE ADHESIVE COMPOSITION

(54) 発明の名称: 接着剤組成物及び該接着剤組成物を用いた接合方法

(57) Abstract: An adhesive composition which is flowable, has a viscosity making the composition applicable, has a long pot life, develops cohesive force upon short-time irradiation with light, does not necessitate temporary fixing, and is excellent in impact resistance and creep resistance after cure. The adhesive composition comprises (X) a compound having a crosslinkable group or a polymerizable group and (Y) a compound which upon irradiation with actinic energy rays generates an ingredient which crosslinks or polymerizes at least part of the compound (X). It has a viscosity of 1 to 10,000,000 cP (25 °C). In the composition, the conversion of the compound (X) immediately after completion of the irradiation with actinic energy rays is 70 % or lower, and that of the compound (X) after 24-hour aging at 25 °C after completion of the irradiation with actinic energy rays is 50 to 100 %. The cured article obtained through 24-hour aging at 25 °C after completion of the irradiation with actinic energy rays has an elongation at break of 10 to 1,000 % and a dynamic tensile modulus of  $10^5$  to  $10^9$  Pa.

[続葉有]



---

(57) 要約:

流動性があり塗布可能な粘性を示し、ポットライフが長く、短時間の光照射で凝集力が発現し、仮止め作業を必要とせず、硬化後の耐衝撃性、耐クリープ性に優れている接着剤組成物を提供する。

(X) 架橋性基あるいは重合性基を有する化合物と、(Y) 活性エネルギー線を照射されることにより、化合物(X)の少なくとも一部を架橋もしくは重合させる成分を生成する化合物(Y)とを含み、粘度が1～1000万cps(25℃)であり、活性エネルギー線の照射を終了直後の化合物(X)の転化率が70%以下、活性エネルギー線の照射を終了してから25℃で24時間養生した後の化合物(X)の転化率が50～100%、活性エネルギー線の照射を終了してから25℃で24時間養生した後の硬化物の破断点伸びが10～1000%、かつ動的引張り弾性率が $10^5 \sim 10^9$  Paの範囲にある接着剤組成物。

## 明 細 書

接着剤組成物及び該接着剤組成物を用いた接合方法

## 5 技術分野

本発明は、常態では流動性があり塗布可能な粘性を示し、短時間の活性エネルギー線の照射で凝集力が向上して仮止め性・仮固定性を発現し、さらに、架橋または重合によって最終的な接合強度に到達する接着剤組成物及び該接着剤組成物を用いた接合方法に関する。

10

## 背景技術

近年、生産性や作業性に優れているため、建築・建材分野において接着剤が多用されるようになってきている。また、工業化住宅等の発展に伴って、建築部材の組立ラインの高速生産に適した接着剤の要求が益々強まっている。

15

特開昭56-67366号公報には、アルコキシシリル基のような加水分解性シリル基を持つ化合物を含み、空気中の湿気等により硬化する接着剤が提案されている。この接着剤は、接着硬化後の耐衝撃性や耐クリープ性に優れている。従って、住宅家屋で常に荷重のかかる部分（タイルの貼り合わせ、壁材の貼り合わせ）等での利用が検討され、上記接着剤は、建築・建設の現場において実際に用いられている。

20

しかしながら、上記接着剤は実質的に空気中の湿気により硬化するため、前記組立ラインに適応させるために速硬化性を有するように設計された場合、ポットライフが短くなり、塗工装置上に長く滞留させることができないといった問題があった。一方、ポットライフを長くするような設計にすると、速やかに硬化しなくなる。従って、ズレを防ぐための

25

処置をしなければならず、かつ硬化まで養生しなければならなかった。

- 一方、従来より、短時間の光照射で硬化する光硬化性の組成物が提案されており（例えば、特開昭 6 3 - 1 3 9 9 6 9 号公報）、該光硬化性の組成物の光硬化性インキ、光硬化性ワニス、光硬化性コーティング材
- 5 または光硬化性接着剤等への利用が提案されている。上記光硬化性組成物を用いた光硬化性接着剤は、短時間で光硬化するため、光硬化性接着剤を感光させるための光を遮るだけで十分な長さのポットライフを確保することができる。従って、インライン用の接着剤としての利用が提案がされている。しかしながら、一般に、光硬化性接着剤では、塗布・貼
- 10 り合わせ後に光が照射されるため、光を実質的に透過しない建築・建材等を用いられる材料には該光硬化性接着剤を適用できなかった。

- また、上記加水分解性シリル基を持つ化合物と光硬化性物質とを組み合わせた硬化組成物が、建築用シーラントとして用いた場合の硬化表面の防汚性、防塵性及びタックの改善や耐候性の改善等の目的で提案され
- 15 いる（例えば、特開昭 5 5 - 3 6 2 4 1 号公報、特開平 8 - 3 2 5 4 6 6 号公報）。しかしながら、短時間の光照射により、速硬化性や凝集力の速やかな発現を達成することは困難であった。

- 本発明は、上記問題点を解決するためになされたものであり、常態では流動性を有し、かつ塗布可能な粘性を示し、ポットライフが長く、また短時間の光照射で凝集力が発現し、仮止め、仮固定作業を必要とせず、
- 20 さらに、接着硬化後の硬化物が耐衝撃性や耐クリープ性等の物性に優れている、接着剤組成物及び該接着剤組成物を用いた接合方法を提供することを課題とする。

## 25 発明の開示

本願の第 1 の発明は、(X) 架橋性基あるいは重合性基を有する化合



- 物と、(Y) 活性エネルギー線を照射されることにより、化合物 (X) の少なくとも一部を架橋もしくは重合させる成分を生成する化合物 (Y) とを含有する接着剤組成物であって、25℃における粘度が1～1000万cpsであり、前記接着剤組成物に前記活性エネルギー線の照射を終了した直後の化合物 (X) の転化率が70%以下であり、前記接着剤組成物への活性エネルギー線の照射を終了してから25℃で24時間養生した後の化合物 (X) の転化率が50～100%の範囲にあり、前記接着剤組成物への前記活性エネルギー線の照射を終了してから25℃で24時間養生した後の硬化物の破断点伸びが10～1000%であり、動的引っ張り弾性率が $10^5 \sim 10^9$  Paの範囲にあることを特徴とする。

- 第1の発明に係る接着剤組成物では、活性エネルギー線の照射前には、遮光または除湿などの適切な保存処置を採用することにより、化合物 (X) が架橋もしくは重合しない。すなわち、化合物 (X) がそのままの状態ではほとんど残存し、常態では、好適な流動性を示す。よって、従来より公知の塗布装置を用いたり、手作業により、様々な被着体に容易に塗布することができる。

- また、活性エネルギー線が照射されると、化合物 (Y) が速やかに分解するものの、通常の貼合作業時間の範囲内では、化合物 (X) の一部または全てが未反応のまま残存する。従って、化合物 (X) の性状及び残存率に応じて、凝集力が発現し、仮止め性を示す程の粘着性を示すような状態となり、様々な被着体への接着に好適に用いることができる。

- また、活性エネルギー線の照射を停止した後も、上記架橋もしくは重合反応が暗反応で進行するので、化合物 (X) の残存率が速やかに低下していき、速やかに硬化物を与える。

上記接着剤組成物では、好ましくは、前記接着剤組成物への活性エネ

ルギー線の照射を終了した直後の化合物 (X) の転化率が 10 ~ 70 % の範囲にあり、前記接着剤組成物への活性エネルギー線の照射直後の動的剪断弾性率が  $10^5 \sim 10^7$  Pa の範囲とされる。従って、活性エネルギー線の照射後に化合物 (X) が実質上存在しなくなった状態において、

5 弾力性に富む硬化物が得られる。

また、好ましくは、前記接着剤組成物に活性エネルギー線の照射を終了した直後の化合物 (X) の転化率が 30 % 以下であり、25℃における粘度が 1 ~ 1000 万 cps の範囲にあり、前記接着剤組成物への前記活性エネルギー線の照射を終了してから 25℃で 12 時間養生した後

10 の化合物 (X) の転化率が 50 ~ 100 % の範囲とされる。この場合には、活性エネルギー線の照射を終了してからある程度の時間に渡り流動性が確保される。従って、粗面への濡れ性に優れた接着剤組成物を提供することができ、この接着剤組成物は、モルタルや合板のような被着体の接着に好適に用いられ得る。

15 なお、本明細書において、動的剪断弾性率及び動的引っ張り弾性率は、粘弾性スペクトルメーターを用い、測定温度は 25℃、印加周波数は動的剪断弾性率の場合 0.1 rad/s、動的引っ張り弾性率の場合 63 rad/s で測定した値である。また、破断点伸びは J I S K 6301 に従って、引っ張り試験機を用い、クロスヘッドスピード 500 mm

20 mm/分及び 25℃の温度で測定した値である。

第 1 の発明に係る接着剤組成物では、上記化合物 (X) 及び化合物 (Y) 以外に、他の成分を含んでいてもよい。次に述べる第 2 の発明に係る接着剤組成物は、このように、化合物 (X) 及び化合物 (Y) 以外の成分をも含む接着剤組成物である。

25 第 2 の発明に係る接着剤組成物は、(A) 一分子中に 2 個以上の加水分解性シリル基を有する化合物と、(B) 化合物 (A) を架橋させるた

めの化合物と、(C) 分子中に重合性基を有する化合物と、(D) 化合物 (C) 中の重合性基を光により重合開始させる化合物と、(E) チキソトロピー付与剤とを含有する。すなわち、第2の発明に係る接着剤組成物における化合物(A)及び(C)は、第1の発明における化合物(X)に相当し、化合物(D)は、第1の発明における化合物(Y)に相当する。化合物(B)は、化合物(A)を湿気により架橋を促進させるための触媒である。

言い換えれば、第2の発明に係る接着剤組成物は、第1の発明に係る接着剤組成物に、さらに、該化合物(A)の架橋を促進させる触媒としての化合物(B)と、チキソトロピー付与剤(E)とを含有させたものに相当する。

第2の発明に係る接着剤組成物では、好ましくは、上記化合物(A)の加水分解性シリル基はアルコキシシリル基であり、また、化合物(A)はポリアルキレングリコールまたはポリオレフィンから選ばれるポリマー中に該アルコキシシリル基が置換した化合物である。

第2の発明における接着剤組成物において、好ましくは、上記化合物(C)の重合性基はラジカル重合性基であり、化合物(D)は光ラジカル発生剤である。第2の発明のより限定的な局面では、上記化合物(C)のラジカル重合性基は、アクリロイル基またはメタクリロイル基である。

第2の発明のさらに限定的な局面では、上記化合物(C)は、分子内に重合性基を1個以上有する重量平均分子量3000以上の重合性化合物(F)を少なくとも1種含む。すなわち、化合物(C)の一部に、化合物(F)が用いられ、それによって、貼り合わせ直後の初期状態における耐クリープ性が高められる。

第2の発明に係る接着剤組成物の他の特定の局面では、上記チキソトロピー付与剤(E)は、ガラスバルーン、ガラスビーズ、表面処理炭酸

カルシウム及び各種シリカからなる群より選ばれる少なくとも1種である。

本発明に係る接合部材の接合方法は、第1、第2の発明の接着剤組成物を、接合部材の片方に塗布し、塗布した接着剤組成物層の上面から活性エネルギー線を照射し、その後、他方の接合部材を貼り合わせることを特徴とする。

以下、本発明を詳細に説明する。

#### 〔第1の発明〕

第1の発明において、化合物(X)の架橋性基あるいは重合性基としては、特に限定されるわけではないが、例えば、アルコキシシリル基、アセトキシシリル基、クロロシリル基、もしくはブロモシリル基などの加水分解性シリル基；エポキシ基、オキセタニル基などのオキシラン；イソシアネート基；アクリロイル基、メタクリロイル基、スチリル基、アリル基、ビニルオキシ基、ビニルオキシカルボニル基、マレイミド基、不飽和性酸無水物などの重合性不飽和基などを挙げることができる。この場合、一分子中に架橋性基または重合性基が複数種含まれていてもよい。また、複数の化合物(X)を併用してもよい。

化合物(X)の具体的な例としては、後述の化合物(A)及び(C)の例や、下記に例示するようなイソシアネート基を分子内に1つ以上有する化合物があり、例えば、芳香族系単官能イソシアネートとしては、フェニルイソシアネート、ナフチルイソシアネート、2,4-ジメトキシフェニルイソシアネート、2,6-ジメチルフェニルイソシアネート、3,5-ジメチルフェニルイソシアネート、3-アセトフェニルイソシアネート、2-ビフェニルイソシアネート、2,6-ジイソプロピルフェニルイソシアネート、2-エトキシフェニルイソシアネート、4-エトキシフェニルイソシアネート、2-エチルフェニルイソシアネート、

- 4-ヘプチルオキシフェニルイソシアネート、4-イソプロピルフェニルイソシアネート、2-メトキシフェニルイソシアネート、3-メトキシフェニルイソシアネート、4-メトキシフェニルイソシアネート、4-メチル-3-ニトロフェニルイソシアネート、2-ニトロフェニルイソシアネート、3-ニトロフェニルイソシアネート、4-ニトロフェニルイソシアネート、2-フェノキシフェニルイソシアネート、2-プロピルフェニルイソシアネート、o-トリルイソシアネート、m-トリルイソシアネート、p-トリルイソシアネート

- 脂肪族系単官能イソシアネートとしては、シクロヘキシルイソシアネート、ペンチルイソシアネート、オクチルイソシアネート、ベンジルイソシアネート、ドデシルイソシアネート、エチルイソシアネート、ヘプチルイソシアネート、エトキシカルボニルイソシアネート、ヘキサデシルイソシアネート、ヘキシルイソシアネート、4-メトキシベンジルイソシアネート、2-メチルベンジルイソシアネート、3-メチルベンジルイソシアネート、4-メチルベンジルイソシアネート

- 芳香族系ジイソシアネートとしては、2, 4-トリレンジイソシアネート (TDI)、フェニルレンジイソシアネート、キシレンジイソシアネート、4, 4'-ジフェニルメタンジイソシアネート (MDI)、MDIとトリフェニルメタントリイソシアネート等との混合物 (クルードMDI)、1, 5-ナフチレンジイソシアネート、イソフロレンジイソシアネート、ジシクロヘキシルメタンジイソシアネート、エチレンジイソシアネート、メチレンジイソシアネート、プロピレンジイソシアネート、テトラメチレンジイソシアネート、トリジンジイソシアネート

- 脂肪族系ジイソシアネートとしては、ヘキサメチレンジイソシアネート (HDI)、イソホロレンジイソシアネート (IPDI)、キシリレンジイソシアネート、水添キシリレンジイソシアネート、ジシクロヘキシルヘン

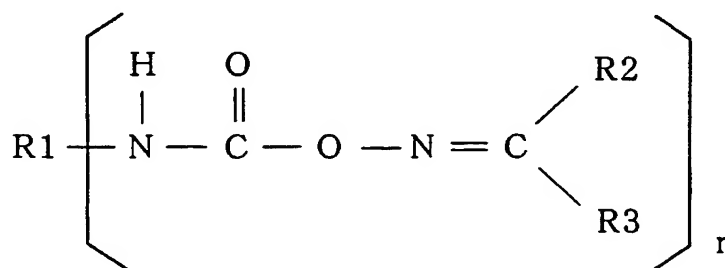
## タジイソシアネート

3官能以上のポリイソシアネートとしては、トリフェニルメタントリイ  
 ソシアネート、ポリメチレンポリフェニルポリイソシアネート、TMP変  
 性TDI、イソシアヌレート結合TDI、TMP変性HDI、イソシアヌ  
 5 レート結合HDI、ビューレート結合HDI、TMP変性IPDI、イソシ  
 アヌレート結合IPDIが例示される。

イソシアネート化合物は、単独で用いられても良いし、2種類以上が併  
 用されても良い。

化合物(Y)としては、化合物(X)の種類に応じて適宜の化合物が  
 10 選ばれる。このような化合物(Y)としては、例えば、後述の化合物(D)  
 で例示している光ラジカル発生剤や光カチオン発生剤、光酸発生剤、光  
 アミン発生剤のような光分解によって化合物(X)の重合性基に対応し  
 た反応開始種を発生する化合物を挙げることができる。また、複数種の  
 化合物(Y)を併用してもよい。

15 光照射によりアミンを発生する光アミン発生剤としては、アシルオキ  
 シイミノ基を持つ化合物、カルバモイルオキシイミノ基を持つ化合物、  
 カルバミン酸o-ニトロベンジルが挙げられる。特に下記の構造式で表  
 されるカルバモイルオキシイミノ基を持つ化合物が好ましい。



R1 : n価の有機基

R 2 : 芳香族基、アルキル基等の有機基

R 3 : 芳香族基、アルキル基等の有機基

n : 1 以上の整数

R 2 と R 3 の好ましい組み合わせとしては、

5 (R 2、R 3) = (メチル、フェニル)、(メチル、ナフチル)

上記構造式の化合物を得る方法としては、ウレタンプレポリマー、または、イソシアネート化合物と、オキシム化合物との反応により得ることができる。反応は公知の方法を用いることができ、例えば、イソシア  
10 ネット基のモル数とオキシムの水酸基のモル数が等量となるように仕込み、必要に応じて錫触媒や3級アミンのようなイソシアネート基と水酸基の反応触媒を添加し反応させることにより得られる。

また、本発明の組成物は、必要に応じて、後述の物性調整剤、増量剤、補強剤、可塑剤、着色剤、難燃剤、タレ防止剤、酸化防止剤、老化防止  
15 剤、紫外線吸収剤、溶剤、香料、顔料、染料、化合物(Y)に対する増感剤等を添加してもよい。

上記活性エネルギー線としては、紫外線、可視光、赤外線、電子線、X線などを挙げることができる。

活性エネルギー線源は、活性エネルギー線の種類に応じて適宜選ばれる。例えば、超高圧水銀灯、高圧水銀灯、中圧水銀灯、低圧水銀灯、メ  
20 タルハライドランプ、ブラックライトランプ、マイクロウェーブ励起水銀灯、ハロゲンランプ、エキシマレーザー、キセノンランプ、蛍光灯、太陽光、電子線照射装置などが挙げられる。

なお、第1の発明において、化合物(X)の転化率(%)は、以下の  
25 式で表される。

$$\text{転化率 (\%)} = [a(0) - a(t) / a(0)] \times 100$$

但し、 $a(0)$  = 活性エネルギー線照射前の接着剤組成物中の化合物 (X) の含有量

5       $a(t)$  = 活性エネルギー線照射後、 $t$  時間経過した後の接着剤組成物中の化合物 (X) の含有量

なお、化合物 (X) の含有量の測定は、化合物 (X) に応じた方法から選ばれる。このような測定方法としては、例えば、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー、薄層クロマトグラフィー、アフィニティーク  
10      ロマトグラフィー、順層クロマトグラフィー、逆層クロマトグラフィー、赤外分光光度計、核磁気共鳴装置、架橋性あるいは重合性の官能基に応じた滴定法、ゲル分率定量法などを用いた方法が挙げられる。

また、第 1 の発明においては、活性エネルギー線照射前の接着剤組成物の  $25^{\circ}\text{C}$  における粘度は  $1 \sim 1000$  万  $\text{c p s}$  の範囲にある。粘度が  
15       $1000$  万  $\text{c p s}$  を超えると、粘度が高くなりすぎ、被着体への塗工が困難となる。なお、本明細書における粘度とは、B 型回転粘度計を用いて、ローター回転速度  $10 \text{ r p m}$  にて測定された値である。

第 1 の発明に係る接着剤組成物では、活性エネルギー線照射終了直後の化合物 (X) の転化率が  $0 \sim 70\%$  の範囲にある。すなわち、活性エ  
20      ネルギー線が照射されると、速やかに化合物 (Y) が分解するものの、通常の貼合作業時間の範囲内では、架橋性あるいは重合性成分である化合物 (X) は、一部あるいは全てが未反応のまま残存するので、化合物 (X) の性状及び残存率に応じて、凝集力が発現し、仮止め性を示す程  
25      の粘着力が発現されることになるか、もしくは、濡れ性を示す流動性を維持しつつも速やかに架橋が完了することになる。従って、被着体への接着を容易にかつ確実に行うことができる。



また、活性エネルギー線照射を終了してから、25℃で24時間養生した後の化合物(X)の転化率が50～100%であり、硬化物の破断点伸びが10～1000%、動的引っ張り弾性率が $10^5 \sim 10^9$  Paの範囲にあるので、硬化後は、耐衝撃接着性や耐久接着性が高められる。

- 5      すなわち、活性エネルギー線の照射後も暗反応により硬化が進行するので、化合物(X)の残存率が速やかに低下していき、上記のような耐衝撃接着性及び耐久接着性に優れた硬化物が与えられる。

〔第2の発明〕

- 第2の発明に用いられる、一分子中に2個以上の加水分解性シリル基を有する化合物(A)における加水分解性シリル基としては、特に限定されず、例えば、シリル基の少なくとも1つの水素原子がアルコキシ基で置換されたもの、シリル基の少なくとも1つの水素原子がオキシム基で置換されたもの、シリル基の少なくとも1つの水素原子がアルケニルオキシ基で置換されたもの、シリル基の少なくとも1つの水素原子がアセトキシ基で置換されたもの、シリル基の少なくとも1つの水素原子がハロゲン基で置換されたもの等が挙げられる。貯蔵安定性の観点から、シリル基の少なくとも1つの水素原子がアルコキシ基で置換されたもの(アルコキシシリル基)が好適に用いられる。
- 10
- 15

- 上記加水分解性シリル基としてアルコキシシリル基を有する化合物としては、接着剤組成物の粘度設計が容易であり、かつ硬化後の凝集力と接着性のバランスを両立させ得るので、一分子中に少なくとも2個以上の加水分解性シリル基を有するポリマーが好適に用いられる。用いられる上記ポリマーとしては、特に限定されず、例えば、プロピレングリコールやエチレングリコール等のポリアルキレングリコール、ポリエステル、ポリアミド、ポリカーボネート、ポリメタクリレート、ポリアクリレート、ポリスチレン、ポリオレフィン等が挙げられ、また、これらの
- 20
- 25

共重合体を用いてもよく、この中でポリアルキレングリコールまたはポリオレフィンが好ましい。これらのポリマーの重量平均分子量としては、4000～30000が好ましく、さらに、10000～30000で、かつ分子量分布 ( $M_w/M_n$ ) が1.6以下のものがより好ましい。

- 5      ここで、上記アルコキシシリル基とは、モノアルコキシシリル基、ジアルコキシシリル基、及びトリアルコキシシリル基を意味し、また、アルコキシ基としては、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、ブトキシ基、tert-ブトキシ基、フェノキシ基、ベンジルオキシ基等が挙げられる。また、ジアルコキシシリル基あるいはトリアルコキシシリル基の場合、同じアルコキシ基を用いてもよいし、異なるアルコキシ基を組み合わせて用いてもよい。
- 10

上記アルコキシシリル基のポリマーへ置換される位置は、ポリマー末端でもよいし、ポリマーの側鎖であってもよい。また、ポリマー末端とポリマー側鎖の両方に位置していてもよい。

- 15      上記化合物 (A) としては、例えば、鐘淵化学工業社製の商品名MSポリマーのMSポリマーS-203、S-303、S-903等、商品名サイリルポリマーのサイリルSAT-200、MA-403、MA-447等、旭硝子社製の商品名エクセスターESS-2410、ESS-2420、ESS-3630等の市販の化合物を用いてもよい。

- 20      化合物 (A) を架橋させるための化合物 (B) は、上記化合物 (A) を空気中の湿気で架橋させる際に、促進作用あるいは触媒作用を示すものであれば特に限定されず、例えば、ジブチル錫ジラウレート、ジブチル錫オキサイド、ジブチル錫ジアセテート、ジブチル錫フタレート、ビス (ジブチル錫ラウリン酸) オキサイド、ジブチル錫ビスアセチルアセトナート、ジブチル錫ビス (モノエステルマレート)、オクチル酸錫、ジブチル錫オクトエート、ジオクチル錫オキサイド等の錫化合物、テト
- 25

ラー $n$ -ブトキシチタネート、テトライソプロポキシチタネート等のチタネート系化合物、ジブチルアミン-2-エチルヘキソエート等のアミン塩類及びその他の酸性触媒及び塩基性触媒等が挙げられ、これらは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

- 5 分子中に重合性基を有する上記化合物(C)は、ラジカル重合性基、カチオン重合性基等の重合性を示す置換基を有する化合物であれば特に限定されず、異なる重合性基を一分子中に複数持ち合わせていてもよい。

ラジカル重合性基としては、例えば、スチリル基、アクリロイル基、メタクリロイル基、ビニルエステル基等が挙げられ、良好な重合性を示すアクリロイル基、メタクリロイル基が好ましい。

上記スチリル基を持つ化合物としては、例えば、スチレン、インデン、 $\alpha$ -メチルスチレン、 $p$ -メチルスチレン、 $p$ -クロロスチレン、 $p$ -クロロメチルスチレン、 $p$ -メトキシスチレン、 $p$ -tert-ブトキシスチレン、ジビニルベンゼン等が挙げられる。

- 15 上記アクリロイル基またはメタクリロイル基を持つ化合物として、例えば、メチル(メタ)アクリレート、エチル(メタ)アクリレート、プロピル(メタ)アクリレート、 $n$ -ブチル(メタ)アクリレート、tert-ブチル(メタ)アクリレート、シクロヘキシル(メタ)アクリレート、2-エチルヘキシル(メタ)アクリレート、 $n$ -オクチル(メタ)アクリレート、イソオクチル(メタ)アクリレート、イソノニル(メタ)アクリレート、イソミリスチル(メタ)アクリレート、ステアリル(メタ)アクリレート、イソボルニル(メタ)アクリレート、ベンジル(メタ)アクリレート、2-ブトキシエチル(メタ)アクリレート、2-フェノキシエチル(メタ)アクリレート、グリシジル(メタ)アクリレート、テトラヒドロフルフリル(メタ)アクリレート、ヘキサンジオールジ(メタ)アクリレート、エチレングリコールジ(メタ)アクリレート、
- 20
- 25

- ポリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、プロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、ポリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールジ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、エポキシアクリレート、ポリエステルアクリレート、ウレタンアクリレート、2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、3-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、4-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、5-ヒドロキシペンチル（メタ）アクリレート、6-ヒドロキシヘキシル（メタ）アクリレート、3-ヒドロキシ-3-メチルブチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピル（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、2-〔（メタ）アクリロイルオキシ〕エチル 2-ヒドロキシエチル フタル酸、2-〔（メタ）アクリロイルオキシ〕エチル 2-ヒドロキシプロピル フタル酸等や、

・化合物 1

- 20  $\text{CH}_2=\text{CH}-\text{C}(\text{O})\text{O}-\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O}-[\text{C}(\text{O})\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O}]_n-\text{H}(n=1 \sim 10)$

・化合物 2

- $\text{CH}_2=\text{C}(\text{CH}_3)-\text{C}(\text{O})\text{O}-\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O}-[\text{C}(\text{O})\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O}]_n-\text{H}(n=1 \sim 10)$

- 25 ・化合物 3



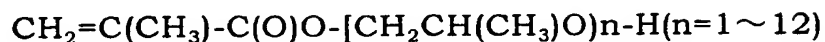
・ 化合物 4



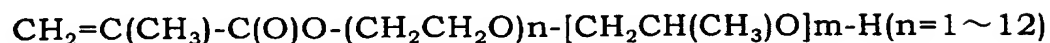
・ 化合物 5



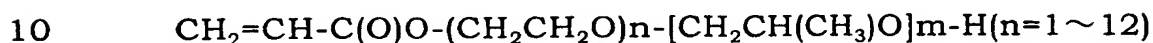
5 ・ 化合物 6



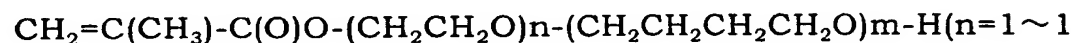
・ 化合物 7



・ 化合物 8



・ 化合物 9

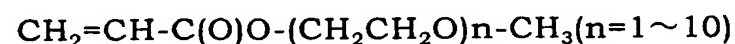


2)

・ 化合物 1 0



・ 化合物 1 1



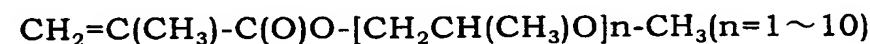
・ 化合物 1 2



20 ・ 化合物 1 3



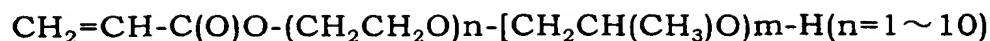
・ 化合物 1 4



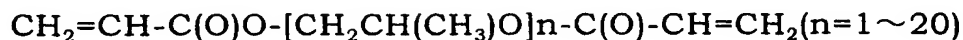
・ 化合物 1 5



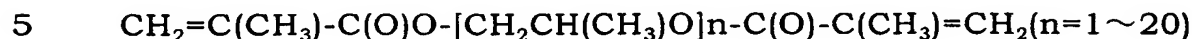
・ 化合物 1 6



・化合物 17



・化合物 18



・化合物 19



・化合物 20



10 等が挙げられる。

上記ビニルエステル基を持つ化合物としては、例えば、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、酪酸ビニル、カプロン酸ビニル、安息香酸ビニル、珪皮酸ビニル等が挙げられる。

また、カチオン重合性基としては、例えば、エポキシ基、オキセタニ  
15 ル基、ビニロキシ基、スチリル基等が挙げられる。

上記エポキシ基を持つ化合物としては、例えば、ビスフェノールA系エポキシ樹脂、水添ビスフェノールA系エポキシ樹脂、ビスフェノールF系エポキシ樹脂、ノボラック型エポキシ樹脂、脂肪族環式エポキシ樹脂、臭素化エポキシ樹脂、ゴム変成エポキシ樹脂、ウレタン変成エポキシ樹脂、グリシジルエステル系化合物、エポキシ化ポリブタジエン、エ  
20 ポキシ化スチレンーブタジエンースチレン共重合体等が挙げられる。

上記オキセタニル基を持つ化合物としては、例えば、3-エチルー3-ヒドロキシメチルオキセタン、3-エチルー3-フェノキシメチルオキセタン、3-エチルー3-ヘキシルオキシメチルオキセタン、1, 4-  
25 -ビス {3-エチルー3-オキセタニルメトキシ} メチル} ベンゼン等が挙げられる。

- 上記ビニロキシ基を持つ化合物としては、例えば、*n*-プロピルビニルエーテル、*n*-ブチルビニルエーテル、イソブチルビニルエーテル、*tert*-ブチルビニルエーテル、*tert*-アミルビニルエーテル、シクロヘキシルビニルエーテル、2-エチルヘキシルビニルエーテル、
- 5   ドデシルビニルエーテル、オクタデシルビニルエーテル、2-クロロエチルビニルエーテル、エチレングリコールブチルビニルエーテル、トリチレングリコールメチルビニルエーテル、安息香酸（4-ビニロキシ）ブチル、エチレングリコールジビニルエーテル、ジエチレングリコールジビニルエーテル、トリエチレングリコールジビニルエーテル、テトラ
- 10   エチレングリコールジビニルエーテル、ブタン-1，4-ジオール-ジビニルエーテル、ヘキサン-1，6-ジオール-ジビニルエーテル、シクロヘキサン-1，4-ジメタノール-ジビニルエーテル、イソフタル酸ジ（4-ビニロキシ）ブチル、グルタル酸ジ（4-ビニロキシ）ブチル、コハク酸ジ（4-ビニロキシ）ブチルトリメチロールプロパントリ
- 15   ビニルエーテル、2-ヒドロキシエチルビニルエーテル、4-ヒドロキシブチルビニルエーテル、6-ヒドロキシヘキシルビニルエーテル、シクロヘキサン-1，4-ジメタノール-モノビニルエーテル、ジエチレングリコールモノビニルエーテル 3-アミノプロピルビニルエーテル、2-（*N*，*N*-ジエチルアミノ）エチルビニルエーテル、ウレタンビニルエーテル、ポリエステルビニルエーテル等が挙げられる。
- 20

上記スチリル基を持つ化合物としては、例えば、スチレン、インデン、 $\alpha$ -メチルスチレン、*p*-メチルスチレン、*p*-クロロスチレン、*p*-クロロメチルスチレン、*p*-メトキシスチレン、*p-tert*-ブトキシスチレン、ジビニルベンゼン等が挙げられる。

- 25   好ましくは、上記化合物（C）の一部に前述した化合物（F）が用いられる。化合物（F）は、分子内に重合性基を1個以上有する、重量平

均分子量 3 0 0 0 以上の重合性化合物である。この重合性化合物 (F) としては、架橋点距離が長くかつ凝集力を発現させるものであり、ラジカル重合性基を 1 個以上有し、分子量が 3 0 0 0 以上の化合物であれば特に限定されない。化合物 (F) の例としては、ポリスチレン末端変性  
5 重合性化合物、ポリメチルメタクリレート末端変性重合性化合物、ポリプロピレン末端変性重合性化合物、ポリエチレンブチレン末端変性重合性化合物、ウレタンアクリレート、ポリエーテルアクリレート等が挙げられる。

上記化合物 (C) の一部に化合物 (F) を用いることにより、貼り合  
10 わせ後初期状態における耐クリープ性が高められる。

好ましくは、化合物 (C) 全体を 1 0 0 重量部とした場合、重合性化合物 (F) が、そのうち 0. 1 ~ 7 0 重量部を占めることが望ましい。化合物 (F) の配合割合が 0. 1 重量部より少ない場合には、化合物 (F) を用いた効果が得られないことがあり、7 0 重量部より多いと、光照射  
15 後の凝集力が、著しく大きくなり、接着剤組成物の被着体への濡れ性が低下し、十分な耐クリープ性を得ることができないことがある。

化合物 (C) 中の重合性基を光により重合開始させる化合物 (D) は、化合物 (C) に含まれる重合性基の重合反応様式により、適宜選択される。

20 重合性基がラジカル重合性基の場合、光照射によりラジカル重合を誘発する化合物 (光ラジカル発生剤) であれば特に限定されず、例えば、4 - (2 - ヒドロキシエトキシ) フェニル (2 - ヒドロキシ - 2 - プロピル) ケトン、 $\alpha$  - ヒドロキシ -  $\alpha$ ,  $\alpha'$  - ジメチルアセトフェノン、メトキシアセトフェノン、2, 2 - ジメトキシ - 2 - フェニルアセトフェ  
25 ノン等のアセトフェノン誘導体化合物、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインプロピルエーテル等のベンゾインエーテル系化合物、ベンジル



ジメチルケタール等のケタール誘導体化合物、ハロゲン化ケトン、アシル  
 ルフォスフィンオキシド、アシルフォスフォナート、2-メチル-1-  
 [4-(メチルチオ)フェニル]-2-モルフォリノプロパン-1-オン、2-ベンジル-2-N,  
 N-ジメチルアミノ-1-(4-モルフォ  
 5 リノフェニル)-1-ブタノン、2,4,6-トリメチルベンゾイル-  
 ジフェニルフォスフィンオキシド、ビス-(2,6-ジメトキシベンゾ  
 イル)-2,4,4-トリメチルペンチルフォスフィンオキシド、ビス  
 ( $\eta$ 5-シクロペンタジエニル)-ビス(ペンタフルオロフェニル)-  
 チタニウム、ビス( $\eta$ 5-シクロペンタジエニル)-ビス[2,6-ジ  
 10 フルオロ-3-(1H-ピリ-1-イル)フェニル]-チタニウムが挙  
 げられる。これらは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよいし、  
 これら化合物を含む市販のものを用いてもよい。

重合性基がカチオン重合性基の場合、光照射によりカチオン重合を誘  
 発する化合物(光カチオン発生剤)であれば特に限定されず、例えば、  
 15 鉄-アレン錯体化合物、芳香族ジアゾニウム塩、芳香族ヨードニウム塩、  
 芳香族スルホニウム塩、ピリジニウム、アルミニウム錯体/シラノール  
 塩等が挙げられる。これらの市販のものとしては、例えば、チバガイギ  
 ー社製イルガキュアー261、旭電化工業社製オプトマーSP-150、  
 オプトマーSP-151、オプトマーSP-170、オプトマーSP-  
 20 171、ゼネラルエレクトロニクス社製UVE-1014、サートマー  
 社製CD-1012、三新化学工業社製サンエイドSI-60L、サン  
 エイドSI-80L、サンエイドSI-100L、日本曹達社製CI-  
 2064、CI-2639、CI-2624、CI-2481、ローヌ・  
 プーラン社製RHODORSILPHOTOINITIATOR207  
 25 4、ユニオンカーバイド社製UVI-6990、ミドリ化学社製BBI  
 -103、MPI-103、TPS-103、MDS-103、DTS

ー 1 0 3、N A Tー 1 0 3、N D Sー 1 0 3等を用いることができる。  
また、20～80℃付近で用いる場合は、熱触媒活性の低い化合物が貯蔵安定性の点から好ましい。また、これらは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

- 5      さらに、光カチオン発生剤の感光性を向上させる目的で、アントラセン、ペリレン、コロネン、テトラセン、ベンズアントラセン、フェノチアジン、フラビン、アクリジン、ケトクマリン、チオキサントン誘導体、ベンゾフェノン、アセトフェノン、2-クロロチオキサノン、2, 4-ジメチルチオキサノン、2, 4-ジエチルチオキサノン、2, 4-ジイソプロピルチオキサノン、イソプロピルチオキサノン等の増感剤を適宜併用してもよい。

- また、上記化合物 (D) の感光波長としては、特に限定されないが、300～800 nmの波長成分を含む光により感光する化合物が好適に用いられる。300 nm未満の波長でのみ感光する化合物 (D) では、  
15    十分なエネルギーを得ることができて速やかに化合物 (C) を重合あるいは架橋させることが可能であるが、本発明の接着剤組成物を厚肉で塗布した場合、表面のみ凝集力が増し、バルク全体に均一に初期凝集力が発現しなくなったり、光照射表面の濡れ性が著しく劣ることがある。一方、800 nmを超える波長でのみ感光する化合物 (D) では、化合物  
20    (C) を低エネルギー (熱エネルギー) でも容易に分解して、重合あるいは架橋させてしまうため、貯蔵安定性を確保できなくなることがある。

- チキソトロピー付与剤 (E) は、接着剤組成物がチキソトロピー性を発現できる化合物から適宜選ばれる、例えば、コロイダルシリカ等の各種シリカ、疎水化炭酸カルシウム等の表面処理炭酸カルシウム、ガラス  
25    バルーン、ガラスビーズ、ポリビニルピロリドン等を挙げることができ、ガラスバルーン、ガラスビーズ、各種シリカ、表面処理炭酸カルシウム

が好ましい。このチキソトロピー付与剤は、本発明の接着剤組成物に用いられる化合物（A）あるいは（C）に対し親和性の高い表面を有することが好ましく、例えば、化合物（C）としてウレタンアクリレートを用いた場合、チキソトロピー付与剤（E）としてはガラスバルーンが好ましく、また、化合物（C）として $\alpha$ ,  $\omega$ -ジアクリロイルポリ（プロピレングリコール）を用いた場合、チキソトロピー付与剤（E）としては、例えば、表面処理炭酸カルシウム等の表面処理を施したものが好適に用いられる。

次に、第2の発明の接着剤組成物に用いられる各成分の配合割合は、機械塗工性及び貯蔵安定性に優れ、ポットライフが長く、短時間の光照射で初期凝集力が発現する限り特に限定されないが、下記の配合割合が好ましい。すなわち、一分子中に2個以上の加水分解性シリル基を有する化合物（A）100重量部に対して、化合物（A）を架橋させるための化合物（B）0.01～20重量部、分子中に重合性基を有する化合物（C）15～100重量部、化合物（C）中の重合性基を光により重合開始させる化合物（D）0.01～20重量部が好ましく、また、チキソトロピー付与剤（E）は、化合物（A）～（E）の合計100容量%に対して、20～65容量%（25℃）の割合で配合されていることが好ましい。

上記化合物（B）の配合割合が、0.01重量部未満では、上記化合物（A）の硬化速度が低下し、実質的に実用に適さなくなることがあり、逆に、20重量部を超えると、硬化速度は十分早くなるが、硬化後のバルクへの影響が著しく、十分な接着力を得ることが困難になることがある。

上記化合物（C）の配合割合が、15重量部未満では、光重合または光架橋した後の初期凝集力が、過剰のチキソトロピー付与剤を添加した

としても、発現できなくなることがある。逆に、100重量部を超えると、光照射後の初期凝集力は十分となるものの、凝集力が著しく大きくなるため、接着剤組成物の被着体への濡れ性が低下し、もはや十分な初期接着性が発現できなくなることがある。

5 上記化合物(D)の配合割合が、0.01重量部未満では、光照射による上記化合物(C)の重合または架橋速度が著しく低下し、光照射後の初期接着力が発現できなくなることがある。逆に、20重量部を超えると、硬化速度は十分早くなるが、硬化後のバルクへの影響が著しく現れるようになり、十分な接着力を得ることが困難なことがある。

10 上記チキソトロピー付与剤(E)の配合割合が、20容量%未満では、十分なチキソトロピー性を得ることが困難となることもあり、また、光照射後の初期接着力を得ることが困難となることがある。逆に、65容量%を超えると、本発明の接着剤組成物の粘度が極端に上がり、機械塗工が困難となったり、塗工速度が著しく低下することがある。

15 本発明の接着剤組成物には、必要に応じて、引張特性等を改善する物性調整剤、増量剤、補強剤、可塑剤、着色剤、難燃剤等の各種添加剤を加えてもよい。

上記の引張特性等を改善する物性調整剤としては、各種シランカップリング剤として、例えば、ビニルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、テトラメトキシシラン、テトラエトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、ジフェニルジメトキシシラン、3-アミノプロピルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、3-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-(2-アミノエチル)-3-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-(2-アミノエチル)-3-アミノプロピルトリエトキシシラン、N,N'-ビス-[3-(トリメトキシシリ

20

25

ル) プロピル] エチレンジアミン、N, N'-ビスー [3- (トリエトキシシリル) プロピル] エチレンジアミン、N, N'-ビスー [3- (トリメトキシシリル) プロピル] ヘキサエチレンジアミン、N, N'-ビスー [3- (トリエトキシシリル) プロピル] ヘキサエチレンジアミン等が  
5 挙げられ、これらは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

上記増量剤としては、本発明による接着剤組成物中に添加して著しいチキソトロピー性を発現しないものが好適に利用でき、例えば、タルク、クレー、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、無水珪素、含水珪素、ケイ酸カルシウム、二酸化チタン、カーボンブラック等が挙げられ、これ  
10 らは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

上記可塑剤としては、例えば、リン酸トリブチル、リン酸トリクレジル等のリン酸エステル類、フタル酸ジオクチル等のフタル酸エステル類、グリセリンモノオレイル酸エステル等の脂肪族一塩基酸エステル類、アジピン酸ジオクチル等の脂肪族二塩基酸エステル類、ポリプロピレング  
15 リコール類等が挙げられ、これらは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

その他、本発明の接着剤組成物には、必要に応じて、タレ防止剤、酸化防止剤、老化防止剤、紫外線吸収剤、溶剤、香料、顔料、染料等を添加してもよい。

20 本発明による接合部材の接合方法は、上記第1, 第2の発明の接着剤組成物を接合部材の片方に塗布し、塗布した接着剤組成物層の上面から光を照射し、その後、他方の接合部材を貼り合わせることを特徴とする。

上記接合方法において、上記接着剤組成物を片方の接合部材に塗布し、次に他方の接合部材を貼り合わせると、光透過性が実質的に無い接合部  
25 材の場合、その後、塗布した接着剤組成物に光を照射しすることは困難となる。一方、光を照射した上記接着剤組成物を接合部材に塗布し、貼

り合わせを試みても、光照射により粘度が上昇し、凝集力が著しく向上しているため、上記接着剤組成物を塗布することが困難となる場合がある。

- 本発明の接合方法において、光照射に用いられる光源としては、上記
- 5 化合物（C）または、感光性を向上させるために添加した上記増感剤に、吸収される波長成分を含む光を発光できる光源であれば特に限定されず、用いられる化合物（C）または増感剤により適宜選択されるが、例えば、
- 10 低圧水銀灯、中圧水銀灯、高圧水銀灯、超高圧水銀灯、エキシマーレーザー、ケミカルランプ、ブラックライトランプ、マイクロウェーブ励起水銀灯、メタルハライドランプ、ナトリウムランプ、蛍光灯、太陽光等が挙げられる。

発明を実施するための最良の形態

- 本発明をさらに詳しく説明するため以下に実施例を挙げるが、本発明
- 15 はこれら実施例のみに限定されるものではない。

（1）接着剤組成物の調製

（実施例 1 ～ 13 及び比較例 1 ～ 5）

- 表 1 ～ 表 3 に示す配合組成に従って、アルミホイルで遮光したビーカー中で、まず、化合物（A）、化合物（B）、化合物（C）、化合物（D）
- 20 及び必要に応じて化合物（F）を均一になるまで攪拌、混合した（粉末等が含まれる場合は、遮光下、50℃に加温しながら混合した）。上記配合物が均一に混合された後に、チキソトロピー付与剤（E）を加え、攪拌機（特殊機化工業社製 TK ホモディスパー、攪拌条件 500 rpm × 10 分）を用いて分散させて、本発明の接着剤組成物を得た。

- 25 （実施例 14）

（ウレタンプレポリマーの合成）

分子量4000のトリメチロールプロパンとプロピレンオキサイドよりなるポリエーテルトリオール（アデカポリエーテルT-4000、旭電化工業社製）100重量部、プロピレンオキサイド（分子量6000）100重量部と、ヘキサメチレンジイソシアネートをNCO/OH比1.59になるように添加し、80℃・5時間反応させて、ウレタンプレポリマーを得た。こうして得られた化合物をウレタンプレポリマーとする。

（光アミン発生剤の合成）

ヘキサメチレンジイソシアネート0.05モルに、THF100mlに溶解したアセトフェノンオキシム0.1モルを添加し、乾燥雰囲気下、窒素雰囲気下50℃で4時間攪拌した。その後、THFを揮発させた。こうして得られた白色の固体を、MEKに80℃で溶解し、再結晶化させることにより精製した。こうして得られた化合物を光アミン発生剤とする。

（組成物の調製）

上記で得られたウレタンプレポリマー100重量部に対して、光アミン発生剤、増感剤アントラセンを表4のように添加し、均一になるまで攪拌して組成物を得た。

（比較例6）

実施例14のウレタンプレポリマーのみを比較例6として用いた。

（2）性能評価方法

上記実施例1～14及び比較例1～6で得られた接着剤組成物について、粘度、圧縮剪断接着力、剪断クリープ、ポットライフ（可使時間）、初期耐クリープ性、転化率、硬化物の破断点伸び、動的引っ張り弾性率及び動的剪断弾性率を以下の方法で評価した。実施例1～13の結果を表5及び6に、比較例1～5の結果を表7に示した。また、実施例14及び比較例6の結果は表4に示した。

## 1) 粘度

J I S K 6 8 3 3 に準拠して、回転粘度計（東京計器社製、B 型粘度計）を用いて、ローター N o 4、回転速度 1 0 r p m の条件下、2 5 ° C で測定した。但し、チキソトロピー付与剤（E）を用いず、上記条件下での測定可能範囲を超え、かつ、接着剤組成物がニュートン粘性体の場合は、用いるローター及び回転速度は適宜選んで評価した。

## 2) 圧縮剪断接着力

スレート被着体（3 5 m m × 2 5 m m × 8 m m）上に、接着剤組成物を 2 5 m m × 2 5 m m × 0 . 3 m m となるように塗布し、他のスレート被着体を貼り合わせ、評価試験サンプルを作成する。得られたサンプルを J I S K 6 8 5 2 に準拠して圧縮試験（クロスヘッドスピード 3 0 0 m m / 分）を行い、光照射前の圧縮剪断接着力を評価した。

次に、上記と同様にして、スレート被着体上に接着剤組成物を塗布し、この塗布面に紫外線（高圧水銀灯、照射エネルギー：7 0 0 m J / c m<sup>2</sup>（実施例 1 ~ 1 3 及び比較例 1 ~ 5）、7 0 0 0 m J / c m<sup>2</sup>（実施例 1 4 及び比較例 6）、3 6 5 n m）を照射した後、他のスレート被着体を貼り合わせ、評価試験サンプルを作成する。得られたサンプルを J I S K 6 8 5 2 に準拠して圧縮試験（クロスヘッドスピード 3 0 0 m m / 分）を行い、光照射直後の圧縮剪断接着力を評価した。

さらに、上記光照射直後の圧縮剪断接着力を評価するのと同じ方法で評価試験サンプルを作成する。得られたサンプルを 2 5 ° C、湿度 6 3 % の条件下で 2 4 時間養生した後、及び別途 7 日間養生した後、J I S K 6 8 5 2 に準拠して圧縮試験（クロスヘッドスピード 5 m m / 分）を行い、それぞれ光照射 2 4 時間後及び 7 日後の圧縮剪断接着力を評価した。

## 3) 剪断クリープ（初期剪断クリープ試験）



評価サンプルは、ペントイト鋼板（25 mm×150 mm×1 mm）に組成物を塗布面積が25 mm×25 mmとなるように塗布した。被塗物に紫外線を照射した後、ペントイト鋼板（25 mm×150 mm×1 mm）を貼り合わせ、実施例の記載の通り23℃で所定の時間養生した。

- 5 得られたサンプルの一方の被着体を吊し、他方の被着体の自重を剪断荷重としてクリープ性を評価した。評価値は、評価サンプルを吊して、30分間静置し、荷重が落下するかどうかで評価した。

#### 4) ポットライフ（可使時間）

- 10 J I S K 6833に準拠して、接着剤組成物をガラス基板上に、塗布厚み0.35 mmとなるように塗布し、23℃、湿度65%、遮光下で放置して、接着剤組成物を塗布してから糸引きが生じるまでの時間をポットライフとして評価した。

#### 5) 初期耐クリープ性（初期90°剥離クリープ試験）

- 15 25 mm×100 mm×0.5 mmの亜鉛鋼板上に、接着剤組成物を25 mm×50 mm×0.35 mmとなるように塗布し、塗布面に、高圧水銀灯を用いて、照射エネルギー強度が700 mJ/cm<sup>2</sup>（実施例1～13及び比較例1～5）、7000 mJ/cm<sup>2</sup>（実施例14及び比較例6）となるように365 nmの波長の紫外線を照射した後、50 mm×150 mm×8 mmのスレートからなる被着体に貼り合わせた。
- 20 貼り合わせ後、直ちに、亜鉛鋼板が下側となるように、スレートの両端を水平に固定し、所定の重量のおもりを亜鉛鋼板の片端にぶら下げ、1時間以内に剥離が発生しないおもりの重量を求めた。このおもりの重量が大きい程、初期耐クリープ性が高いことを示す。

#### 6) 転化率

- 25 活性エネルギー線照射を終了した直後、活性エネルギー線の照射を終了してから25℃で12時間養生した後、及び活性エネルギー線の照射

を終了してから 25℃で 24 時間養生した後の化合物 (C) の各転化率を測定した。

- 5      なお、転化率の測定に際し、化合物 (C) の含有量は、R I (Retlactive Index) 装置を備えたゲルパーミエーションクロマトグラフィーにより求め、活性エネルギー線照射前の化合物 (C) の含有量に対する割合で上記各転化率を求めた。

7) 硬化物の破断点伸び

- 10      J I S   K   6 3 0 1 に従って、クロスヘッドスピード 5 0 0 mm / 分及び 25℃の条件で、引っ張り試験機を用いて、活性エネルギー線照射を終了してから 25℃で 24 時間養生した後の硬化物の破断点伸びを測定した。

8) 動的引っ張り弾性率

- 15      活性エネルギー線の照射を終了してから 25℃で 24 時間養生した後の硬化物の動的引っ張り弾性率を、粘弾性スペクトルメーターを用い、25℃及び印加周波数 1 0 H z の条件で測定した。

9) 動的剪断弾性率

活性エネルギー線の照射を終了した直後、硬化物の動的剪断弾性率を、粘弾性スペクトルメーターを用い、測定温度 25℃及び印加周波数 0 . 0 1 6 H z の条件で測定した。

表 1

分類	組成、商品名	メーカー	実施例						
			1	2	3	4	5	6	7
化合物 (A)	MS ホリマー S-303	鐘淵化学工業社	100	100	100	100	100	100	100
化合物 (B)	錫系触媒, SB-65	三共有機合成社	1	1	1	1	1	1	1
化合物 (C)	クレタソアクリレート, AH-600	共栄社化学社	18	15	—	—	18	18	18
	$\alpha, \omega$ -ジ'アクリロイル- ホ'リ'ロビ'レング'リコール, APG-700	新中村化学工業社	—	—	15	—	—	—	—
	ホ'リ(プロビ'レング'リコール) モノアクリレート, ヒ'スコート#320	大阪有機化学社	—	15	5	—	—	—	—
	3-7x/キシ-2- ヒド'ロキシ'ロビ'アクリレート, M-600A	共栄社化学社	—	—	—	80	—	—	—
	パ'ラミ'ロフェ'ロエチレ'ン オキサイト'変性アクリレート, アロニックス M-110	東亜合成社	—	—	—	—	—	—	—
化合物 (F)	ホ'リメチルメタクリレート マクロモノマー, AA-6	東亜合成社	—	—	—	—	—	—	—
	クレタソアクリレート アロニックス M-1310	東亜合成社	—	—	—	—	—	—	—
化合物 (D)	Irgacure-819	チバ'ス' ジャリテイ'ナ'ル社	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
チキソトロピ'ン 付与剤 (E)	カ'ラ'ス'ル'ン, Q-Cell 520	PQ Australia Pty. 社	—	—	—	—	60	50	—
	表面処理炭酸カルシウム, ヒ'スコアイト U	白石工業社	—	—	—	—	—	—	30

配合組成単位：化合物 (A) ~ (D) は重量部、チキソトロピ'ン付与剤 (E) は容量%

表 2

分類	組成, 商品名	メーカー	実施例									
			8	9	10	11	12	13				
化合物 (A)	MS ポリマー S-303	鐘淵化学工業社	100	100	100	100	100	100				
化合物 (B)	錫系触媒, SB-65	三共有機合成社	1	1	1	1	1	1				
化合物 (C)	クレタソート, AH-600	共栄社化学社	18	15	—	—	15	—				
	α, ω-ジブチロイル- ポリブチレングリコール, APG-700	新中村化学工業社	—	—	15	—	—	—				
	ポリ(ブチレングリコール) モノグリレート, ビスコート#320	大阪有機化学社	—	15	5	—	15	—				
	3-フェニル-2- ヒドロキシプロピルグリレート, M-600A	共栄社化学社	—	—	—	80	—	—				
	パラタリフェノールエチレン オキサイド変性グリレート, プロテックス M-110	東亜合成社	—	—	—	—	—	30				
化合物 (F)	ポリメチルメタクリレート マクロマー, AA-6	東亜合成社	—	—	—	—	1	—				
	クレタソート プロテックス M-1310	東亜合成社	—	—	—	—	—	30				
化合物 (D)	Irgacure-819	チバ・ス・ジェリティー・ケミカル社	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5				
チキソトロピー 付与剤 (E)	カラスパルソン, Q-Cell 520	PQ Australia Pty. 社	—	60	—	—	—	—				
	表面処理炭酸カルシウム, ビスコライト U	白石工業社	50	—	50	40	60	50				

配合組成単位: 化合物 (A) ~ (D) は重量部、チキソトロピー付与剤 (E) は容量%

表 3

分類	組成, 商品名	メーカー	比較例				
			1	2	3	4	5
化合物 (A)	MS ホリマー S-303	鐘淵化学工業社	100	100	100	—	100
化合物 (B)	錫系触媒, SB-65	三共有機合成社	—	1	1	1	1
化合物 (C)	ウレタンアクリレート, AH-600	共栄社化学社	—	—	—	—	10
	$\alpha, \omega$ -ジ'アクリロイル'ホ'リ'プロピ'レン'グ'リコール, APG-700	新中村化学工業社	—	—	—	100	—
	ホ'リ' (ブ'ロビ'レン'グ'リコー'ル) モ'リアクリレート, ビ'スコート#320	大阪有機化学社	—	—	—	—	—
	3-フェノキシ-2-ヒト'ロキシ'プロピ'ルアクリレート, M-600A	共栄社化学社	—	—	—	—	—
	ハ'ラクミ'ルフェノールエチレンオキサイド'変性アクリレート, プロニックス M-110	東亜合成社	—	—	—	—	—
	ホ'リ'メチルメタクリレートマクロモノマー, AA-6	東亜合成社	—	—	—	—	—
化合物 (F)	ウレタンアクリレート プロニックス M-1310	東亜合成社	—	—	—	—	—
化合物 (D)	Irgacure-819	チハ'スベ'シヤリテイ'グミカル社	—	—	—	0.5	0.5
チキソトロピー付与剤 (E)	カ'ラス'ハ'ル'ン', Q-Cell 520	PQ Australia Pty. 社	—	—	60	—	—
	表面処理炭酸カルシウム, ビ'スコライト U	白石工業社	—	—	—	—	—

配合組成単位：化合物 (A) ~ (D) は重量部、チキソトロピー付与剤 (E) は容量%

表 4

配 合 組 成		実施例 14	比較例 6
ウレタンプレポリマー		100	100
光アミン発生剤		10	—
光増感剤   アントラセン		0.5	—
性 能 評 価	粘度 (cps)	100000	100000
	光照射直後	100000	100000
	光照射前	<0.01	<0.01
	光照射直後	<0.01	<0.01
	光照射 2 4 時間後	6.5	1.2
	光照射 7 日後	7.1	3.1
	光照射直後	落下	落下
	光照射 5 分後	落下せず	落下
	ポットライフ (時間)	> 12	> 12
	光照射直後	14	0
	転化率 (%)	55	5
	光照射 1 2 時間後		
	光照射 2 4 時間後	90	32
	破断点伸び (%)	290	測定不可
	動的引っ張り弾性率 (Pa)	$1.79 \times 10^6$	測定不可

表 5

		実施例						
粘度 (c p s)		1	2	3	4	5	6	7
圧縮剪断 接着力 (kgf/cm <sup>2</sup> )	光照射前	14000	10000	12000	500	440000	330000	250000
	光照射直後	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
	光照射 24 時間後	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.4	0.3	0.5
	光照射 7 日後	53	65	59	64	14	13	13
剪断 クリーブ	光照射直後	19	17	16	13	17	16	14
	光照射 10 分後	落下	落下	落下	落下せず	落下せず	落下せず	落下せず
ポットライフ (時間)	光照射直後	落下せず	落下せず	落下せず	落下せず	落下せず	落下せず	落下せず
	初期 90° 剥離クリーブ (g)	>12	>12	>12	>12	>12	>12	>12
転化率 (%)	光照射直後	<100	<100	<100	<100	200	200	100
	光照射 12 時間後	55.3	34	45	51	15	13	55
	光照射 24 時間後	71	76	64	78	63	57	67
	破断点伸び	79	81	77	84	72	68	70
動的引張り弾性率	破断点伸び	150	130	110	350	45	75	110
	動的引張り弾性率	6.80×10 <sup>6</sup>	3.90×10 <sup>6</sup>	5.60×10 <sup>5</sup>	8.40×10 <sup>5</sup>	3.05×10 <sup>7</sup>	1.84×10 <sup>7</sup>	8.34×10 <sup>6</sup>
動的剪断弾性率 (Pa)		2.59×10 <sup>4</sup>	2.14×10 <sup>4</sup>	1.89×10 <sup>4</sup>	4.33×10 <sup>4</sup>	8.31×10 <sup>5</sup>	7.88×10 <sup>5</sup>	1.19×10 <sup>5</sup>

表 6

実施例							
		8	9	10	11	12	13
粘度 (c p s)		450000	400000	340000	6500	400000	480000
圧縮剪断 接着力 (kgf/cm <sup>2</sup> )	光照射前	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
	光照射直後	0.5	0.8	0.5	0.9	0.8	0.6
	光照射 24 時間後	10	15	12	14	15	17
	光照射 7 日後	13	16	18	14	16	17
剪断 クリープ	光照射直後	落下せず	落下せず	落下せず	落下せず	落下せず	落下せず
	光照射 10 分後	落下せず	落下せず	落下せず	落下せず	落下せず	落下せず
ポットライフ (時間)		>12	>12	>12	>12	>12	>12
初期 90° 剥離クリープ (g)		100	200	100	100	400	400
転化率 (%)	光照射直後	59	57	59	39	57	41
	光照射 12 時間後	65	68	73	76	80	68
	光照射 24 時間後	69	75	82	81	84	73
破断点伸び		135	80	130	310	130	145
動的引っ張り弾性率		2.11×10 <sup>7</sup>	8.82×10 <sup>6</sup>	4.11×10 <sup>6</sup>	5.37×10 <sup>6</sup>	9.32×10 <sup>6</sup>	1.27×10 <sup>8</sup>
動的剪断弾性率 (Pa)		2.04×10 <sup>5</sup>	9.01×10 <sup>5</sup>	2.00×10 <sup>5</sup>	4.81×10 <sup>5</sup>	8.51×10 <sup>5</sup>	2.89×10 <sup>5</sup>



表 7

		比較例				
		1	2	3	4	5
粘度 (cps)		30000	30000	420000	65	35000
圧縮剪断 接着力 (kgf/cm <sup>2</sup> )	光照射前	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
	光照射直後	<0.01	<0.01	<0.01	貼合不可	<0.01
	光照射 24 時間後	<0.01	0.14	38	貼合不可	0.31
	光照射 7 日後	<0.01	3	17	貼合不可	13
剪断 クリーブ	光照射直後	落下	落下	落下	落下	落下
	光照射 10 分後	落下	落下	落下	落下	落下
ポットライフ (時間)		>12	>12	>12	>12	>12
初期 90° 剥離クリーブ (g)		<100	<100	<100	<100	<100
転化率 (%)	光照射直後	0	0	0	>95	18
	光照射 12 時間後	0	12	12	>95	28
	光照射 24 時間後	0	40	40	>95	45
破断点伸び		測定不可	280	35	2	170
動的引っ張り弾性率		測定不可	5.50×10 <sup>5</sup>	6.40×10 <sup>5</sup>	4.40×10 <sup>5</sup>	5.40×10 <sup>6</sup>

表 4～6 に示したように、実施例 1～14 の接着剤組成物は、塗布粘度が適当で、光照射直後の接着力が高く凝集力が向上しており、ポットライフも長く、また、光照射 7 日後の接着力も十分発現している。

- 5 表 4、表 7 に示したように、比較例 1, 2, 4～6 の接着剤組成物は、チキソトロピー付与剤 (E) を含有しないため、また、比較例 3 の接着剤組成物は、分子中に重合性基を有する化合物 (C) 及び化合物 (C) 中の重合性基を光により重合開始させる化合物 (D) を含有しないため、光照射直後の接着力が劣っている。

## 10 発明の効果

- 第 1 の発明に係る接着剤組成物では、活性エネルギー線を照射する前、すなわち初期状態では、十分な流動性を有し、塗布装置や手作業により容易に被着体に塗布することができる。そして、活性エネルギー線が照射されると、速やかに化合物 (Y) が分解し、化合物 (X) が架橋もしくは重合する。この場合、通常の塗布時間の範囲内では、化合物 (X) 15 の一部が未反応のまま残存し、化合物 (X) の残存率に応じて、適度な凝集力が発現するので、仮止めを必要としない程の粘着性を示す。また、活性エネルギー線の照射を停止した後、上記重合及び架橋が暗反応で進行するので、速やかに硬化が進行する。

- 20 よって、第 1 の発明によれば、貯蔵安定性に優れ、接着に際しての作業性及び硬化物の硬化性に優れた接着剤を提供することができる。また、硬化後は、優れた耐衝撃性及び耐クリープ性を示す。

- 第 2 の発明に係る接着剤組成物は、空気中の湿気で硬化する成分に、短時間の光照射により凝集力を発現するような成分と、チキソトロピー付与剤を含有するため、常態では流動性があり塗布可能な粘性を示し、25 ポットライフが長く、また短時間の光照射で凝集力が発現し、仮止め、

仮固定作業を必要としないためラインの接合工程に適応でき、かつ接着硬化後の耐衝撃性、耐クリープ性等の物性に優れている。

## 請 求 の 範 囲

1. (X) 架橋性基あるいは重合性基を有する化合物と、

5 (Y) 活性エネルギー線を照射されることにより、化合物 (X) の少なくとも一部を架橋もしくは重合させる成分を生成する化合物 (Y) とを含有する接着剤組成物であって、

25℃における粘度が1～1000万cpsであり、前記接着剤組成物に前記活性エネルギー線の照射を終了直後の化合物 (X) の転化率が70%以下であり、前記接着剤組成物への活性エネルギー線の照射を終了してから25℃で24時間養生した後の化合物 (X) の転化率が50  
10 ～100%の範囲にあり、前記接着剤組成物への前記活性エネルギー線の照射を終了してから25℃で24時間養生した後の硬化物の破断点伸びが10～1000%、かつ動的引っ張り弾性率が $10^5 \sim 10^9$  Paの範囲にあることを特徴とする接着剤組成物。

15 2. 前記接着剤組成物への活性エネルギー線の照射を終了直後の化合物 (X) の転化率が10～70%の範囲にあり、前記接着剤組成物への活性エネルギー線の照射を終了した直後の動的剪断弾性率が $10^5 \sim 10^7$  Paの範囲にあることを特徴とする請求項1に記載の接着剤組成物。

3. 前記接着剤組成物に活性エネルギー線の照射を終了直後の化合物  
20 (X) の転化率が30%以下であり、25℃における粘度が1～1000万cpsの範囲にあり、

前記接着剤組成物への前記活性エネルギー線の照射を終了してから25℃で12時間養生した後の化合物 (X) の転化率が50～100%の範囲にあることを特徴とする請求項1に記載の接着剤組成物。

25 4. 下記の成分を含有することを特徴とする接着剤組成物。

(A) 一分子中に2個以上の加水分解性シリル基を有する化合物

- (B) 化合物 (A) を架橋させるための化合物
- (C) 分子中に重合性基を有する化合物
- (D) 化合物 (C) 中の重合性基を光により重合開始させる化合物
- (E) チキソトロピー付与剤
- 5 5. 上記化合物 (A) の加水分解性シリル基がアルコキシシリル基であ  
って、また、化合物 (A) がポリアルキレングリコールまたはポリオレ  
フィンから選ばれるポリマー中に該アルコキシシリル基が置換した化  
合物であることを特徴とする請求項 4 に記載の接着剤組成物。
- 10 6. 上記化合物 (C) の重合性基がラジカル重合性基であって、上記化  
合物 (D) が光ラジカル発生剤であることを特徴とする請求項 4 または  
5 に記載の接着剤組成物。
7. 上記化合物 (C) のラジカル重合性基が、アクリロイル基またはメ  
タクリロイル基から選ばれる重合性基であることを特徴とする請求項 4  
～ 6 のいずれかに記載の接着剤組成物。
- 15 8. 上記化合物 (C) が、分子内に重合性基を 1 個以上有する重量平均  
分子量 3 0 0 0 以上の重合性化合物 (F) を少なくとも 1 種含むことを  
特徴とする、請求項 4 ～ 7 のいずれかに記載の接着剤組成物。
9. 上記チキソトロピー付与剤 (E) が、ガラスバルーン、ガラスビー  
ズ、表面処理炭酸カルシウム及び各種シリカからなる群より選ばれる少  
くとも 1 種であることを特徴とする請求項 4 ～ 8 のいずれかに記載の接  
20 着剤組成物。
10. 請求項 1 ～ 9 のいずれかに記載の接着剤組成物を、接合部材の片  
方に塗布し、塗布した接着剤組成物層の上面から光を照射し、その後、  
他方の接合部材を貼り合わせることを特徴とする接合部材の接合方法。



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/05694

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C09J201/00, C09J4/06, C09J17/02, C09J5/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C09J1/00-C09J201/10, C08L1/00-C08L101/16

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitauyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000  
 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CA(STN), WPI/L(QUESTEL), REGISTRY(STN)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 6-80825, A (Three Bond Co., Ltd.), 22 March, 1994 (22.03.94), Claims; Par. No. [0019] (Family: none)	1-10
X	JP, 6-228248, A (Three Bond Co., Ltd.), 16 August, 1994 (16.08.94), Claims; Par. Nos. [0019], [0021] (Family: none)	1-10
X	JP, 9-137137, A (Sekisui Chem. Co., Ltd.), 27 May, 1997 (27.05.97), Claims; Par. No. [0020] (Family: none)	1-10
X	JP, 3-160053, A (Kanegafuchi Chem. Ind. Co., Ltd.), 10 July, 1991 (10.07.91), Claims; page 5, lower right column (Family: none)	1-10
X	JP, 8-325466, A (Asahi Glass Co., Ltd.), 10 December, 1996 (10.12.96), Claims; Par. No. [0057] (Family: none)	1-10
X	EP, 35049, A1 (Kanegafuchi Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 09 September, 1981 (09.09.81)	1-10

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not  
 considered to be of particular relevance  
 "E" earlier document but published on or after the international filing  
 date  
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is  
 cited to establish the publication date of another citation or other  
 special reason (as specified)  
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other  
 means  
 "P" document published prior to the international filing date but later  
 than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or  
 priority date and not in conflict with the application but cited to  
 understand the principle or theory underlying the invention  
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be  
 considered novel or cannot be considered to involve an inventive  
 step when the document is taken alone  
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be  
 considered to involve an inventive step when the document is  
 combined with one or more other such documents, such  
 combination being obvious to a person skilled in the art  
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
 13 November, 2000 (13.11.00)

Date of mailing of the international search report  
 21 November, 2000 (21.11.00)

Name and mailing address of the ISA/  
 Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/05694

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
	Claims & JP, 55-36241, A & US, 4322272, A	
P,X	JP, 2000-44923, A (Sekisui Chem. Co., Ltd.), 15 February, 2000 (15.02.00), Claims; Par. No. [0098] (Family: none)	1-10
E,X	JP, 2000-273418, A (Sekisui Chem. Co., Ltd.), 03 October, 2000 (03.10.00) Claims; Par. No. [0016] (Family: none)	1-10



## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JPO0/05694

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int Cl<sup>7</sup> C09J201/00, C09J4/06, C09J171/02, C09J5/00

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int Cl<sup>7</sup> C09J1/00-C09J201/10, C08L1/00-C08L101/16,

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922年-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971年-2000年  
 日本国登録実用新案公報 1994年-2000年  
 日本国実用新案登録公報 1996年-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CA (STN), WPI/L (QUESTEL), REGISTRY (STN)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP. 6-80825, A (株式会社スリーボンド), 22. 3月. 1994 (22. 03. 94), 特許請求の範囲, 【0019】 (ファミリーなし)	1-10
X	JP. 6-228248, A (株式会社スリーボンド) 16. 8月. 1994 (16. 08. 94), 特許請求の範囲, 【0019】、【0021】 (ファミリーなし)	1-10
X	JP. 9-137137, A (積水化学工業株式会社), 27. 5月. 1997 (27. 05. 97), 特許請求の範囲, 【0020】 (ファミリーなし)	1-10

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

13. 11. 00

国際調査報告の発送日

21.11.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

安藤 達也 印

4V

9285

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 3-160053, A (鐘淵化学工業株式会社), 10. 7月. 1991 (10. 07. 91), 特許請求の範囲、5頁右下欄 (ファミリーなし)	1-10
X	JP, 8-325466, A (旭硝子株式会社), 10. 12月. 1996 (10. 12. 96), 特許請求の範囲、【0057】 (ファミリーなし)	1-10
X	EP, 35049, A1 (KANEGAFUCHI KAGAKU KOGYO KABUSHIKI KAISYA), 09. Sep. 1981 (09. 09. 81), CLAIM & JP, 55-36241, A & US, 4322272, A	1-10
P, X	JP, 2000-44923, A (積水化学工業株式会社), 15. 2月. 2000 (15. 02. 00), 特許請求の範囲、【0098】 (ファミリーなし)	1-10
E, X	JP, 2000-273418, A (積水化学工業株式会社), 3. 10月. 2000 (03. 10. 00), 特許請求の範囲、【0016】 (ファミリーなし)	1-10